

POLYMER ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL AND STACK THEREOF

Publication number: JP2001118592

Publication date: 2001-04-27

Inventor: KOBAYASHI SUSUMU; HOSAKA MASATO; KANBARA TERUHISA

Applicant: MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

Classification:

- international: *H01M8/02; H01M8/10; H01M8/24; H01M8/02; H01M8/10; H01M8/24; (IPC1-7): H01M8/02*

- European: H01M8/02D; H01M8/02D2

Application number: JP19990295050 19991018

Priority number(s): JP19990295050 19991018

Also published as:

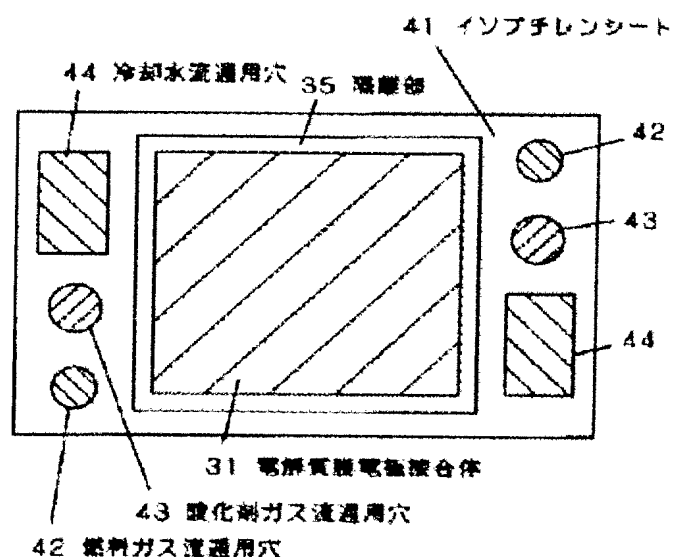


EP1246281 (A1)
WO0129921 (A1)
CN1379919 (A)
CN1186840C (C)

Report a data error here

Abstract of JP2001118592

PROBLEM TO BE SOLVED: To solve the problems where it has not been able to effectively seal gas in the case of operating a conventional polymer electrolyte fuel cell for a long time under pressure operation and also that it has not been able to change only cell whose performance is degraded in a plural stacked cells. **SOLUTION:** It is constituted so that a body bonding electrodes of electrolyte film comprises a gas seal portion which covers a hydrogen ion conductivity polymer electrolyte film part pushed out from edge part of a porous of catalyst electrode and the hydrogen ion conductivity polymer electrolyte film part entered into its edge part and pushed out from its the edge part.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-118592

(43)Date of publication of application : 27.04.2001

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

H01M 8/24

(21)Application number : 11-295050

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 18.10.1999

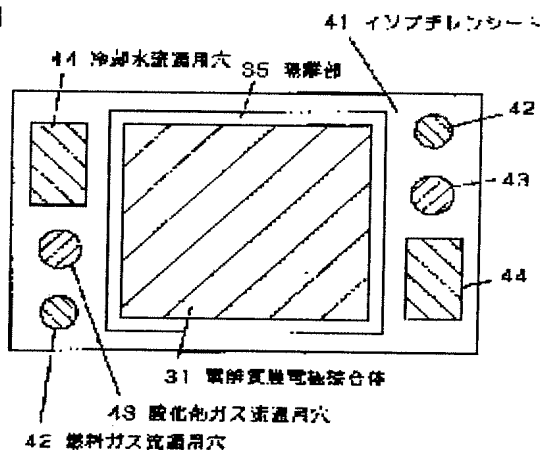
(72)Inventor : KOBAYASHI SUSUMU
HOSAKA MASATO
KANBARA TERUHISA

(54) POLYMER ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL AND STACK THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To solve the problems where it has not been able to effectively seal gas in the case of operating a conventional polymer electrolyte fuel cell for a long time under pressure operation and also that it has not been able to change only cell whose performance is degraded in a plural stacked cells.

SOLUTION: It is constituted so that a body bonding electrodes of electrolyte film comprises a gas seal portion which covers a hydrogen ion conductivity polymer electrolyte film part pushed out from edge part of a porous of catalyst electrode and the hydrogen ion conductivity polymer electrolyte film part entered into its edge part and pushed out from its the edge part.



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2001-118592
(P2001-118592A)

(43)公開日 平成13年4月27日(2001.4.27)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M	8/02
	8/10		8/10
	8/24		8/24
			S 5 H 0 2 6
			E
			T

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平11-295050

(22)出願日 平成11年10月18日(1999.10.18)

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社
大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 小林 晋

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 保坂 正人

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74)代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

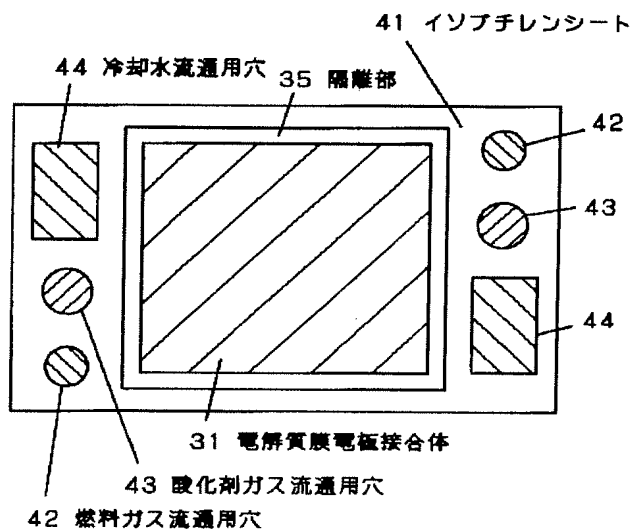
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池及び電池スタック

(57)【要約】

【課題】 これまでの高分子電解質型燃料電池は、加圧運転状態で長期運転するとガスシールに課題があった。また、複数の素電池を積層した電池スタックは、性能が劣化した素電池だけを交換するのは困難であった。

【解決手段】 燃料電池の構成要素である電解質膜電極接合体は、多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した水素イオン伝導性高分子電解質膜部分と、多孔性触媒電極の縁部分の内部に入り込み、かつ、多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した前記水素イオン伝導性高分子電解質膜部分を覆うガスシール部分とを具備した構造とする。



(2)

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 水素イオン伝導性高分子電解質膜と、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜の両面に配置した一対の多孔性触媒電極とからなる電解質膜電極接合体と、前記多孔性触媒電極の一方に燃料ガスを供給排出し、他方に酸化剤ガスを供給排出するガス流路を有する一対のセパレータ板とを具備した高分子電解質型燃料電池において、前記電解質膜電極接合体は、前記多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した前記水素イオン伝導性高分子電解質膜部分と、前記多孔性触媒電極の縁部分の内部に入り込み、かつ、前記多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した前記水素イオン伝導性高分子電解質膜部分を覆うガスシール部分とを具備したことを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 ガスシール部分と水素イオン伝導性高分子電解質膜とが接触する部分は、前記ガスシール剤を前記水素イオン伝導性高分子電解質膜に化学的に結合したことを特徴とする請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 ガスシール部分は、燃料ガスと酸化剤ガスをセパレータに導入するための貫通穴と、前記貫通穴の外周に配置したガスカート部分とを具備したシート状構造を有することを特徴とする請求項 1 または 2 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 請求項 1、2 または 3 記載の高分子電解質型燃料電池を締結治具により積層した電池スタックであって、前記締結治具を緩めることで、電解質膜電極接合体、セパレータ板または前記高分子電解質型燃料電池の少なくとも 1 枚を個々に取り出し交換できることを特徴とする電池スタック。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、高分子電解質型燃料電池スタックに関し、特にその構成要素である電解質膜電極接合体の構成を改良することで、電池スタックのガスシール性とメンテナンスを容易にしたものである。

【0002】

【従来の技術】 高分子電解質燃料電池は、水素イオン伝導膜の片方を燃料ガス（水素など）に、他方を酸化剤ガス（空気など）に暴露し、水素イオン伝導膜を介した化学反応により水を合成し、これによって生じる反応エネルギーを電気的に取り出すことを基本原理としている。従来の燃料電池の構造を示した模式を図 1 に、また断面を図 2 に示した。

【0003】 図 1 と図 2 において、セパレーター 13 に形成したガス流路より導入した反応ガスは、水素イオン伝導膜 11 を介して多孔質触媒電極 12 において電気化学反応を起こし、ここで生じた電力はセパレーター 13 を通して外部に回収される。この構成で明らかなように、水素イオン伝導膜 11 と多孔質触媒電極 12 とは物

理的に接合する必要がある。水素イオン伝導膜 11 の両面に多孔質触媒電極 12 を置き、これを熱プレス等で一体形成するのが一般的である。このようにして作成したものを、電解質膜電極接合体 14 と呼び、独立して扱うことが出来る。パッキン 15 は、電解質膜電極接合体 14 とセパレーター 13 との間に配置し、導入ガスの外部への漏洩を防止する。

【0004】 水素イオン伝導膜は、イオン伝導性は有するが、通気性と電子伝導性とは有せず、燃料極と酸素極とを物理的かつ電子的に隔絶する働きを持つ。ところが、水素イオン伝導膜の大きさが、多孔質触媒電極より小さい場合には、電解質膜電極接合体の内側で、多孔質触媒電極どうしが電氣的に短絡し、また酸化剤ガスと燃料ガスとが混合し（クロスリーク）、電池としての機能を失う。このため、水素イオン伝導膜の面方向の大きさは、必ず多孔質触媒電極と同じか、より大きくとる必要がある。ただし、現在使用されている水素イオン伝導膜はきわめて薄く、構造支持材としての物理的強度を持たないため、これを多孔質触媒電極より大きくはみ出させて、パッキンとセパレーターとで挟持する支持構造を取ることは出来ない。そこで、多孔質触媒電極 12 の大きさは、図 2 に示したように、セパレーター 13 の内室より大きく、外寸よりは小さく取り、多孔質触媒電極自体を多孔質触媒電極の支持体とするのが一般的である。

【0005】 しかしながら、多孔質触媒電極は良好な通気性を持つために、上記の構成では反応ガスが多孔質触媒電極の端部よりセパレーターの外に漏洩する。そこで、多孔質触媒電極には、熱硬化性樹脂材料を含浸したのち、これを熱硬化した樹脂封止部 21 を設け、これによりガス封止構造を形成するのが一般的である。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 上述のガス封止構造には、以下の課題がある。樹脂封止部を形成する時は、樹脂材料を溶媒に溶かし、これを多孔質電極に含浸するため、樹脂材料を溶かした溶液の粘度を低くしなければならない。この溶液を多孔質電極に含浸した時は、樹脂材料が多孔質電極内の細孔を完全に埋めているが、硬化時に溶媒が揮発するため、硬化後は封止部分の内側で隙間が生じる。また通常、樹脂材料は硬化反応で体積的な収縮を起こす。この体積収縮と溶媒揮発により、架橋重合後に十分なシール性を維持することが困難であった。

【0007】 この課題を解決するため、無希釈の樹脂材料を圧入する工法、あるいは非収縮性のフィラー（カーボン、タルク等）を樹脂材料に混合する工法が試みられている。しかし、このような工法では樹脂材料で電極細孔を埋めること自体が困難であり、完全なシール性は得られないという課題があった。

【0008】 また、特開平 11-45729 号公報に示されているように、多孔質電極を熱可塑性樹脂フィルムで被覆し、イオン伝導膜との接着シールを行う方法が試行され

ているが、この方法にも以下のような課題がある。現在使用されている水素イオン伝導膜は、水を含んだ状態で水素イオンの輸送を行うものであり、必然的に強い分子内極性を持つ必要がある。現在市販されている水素イオン伝導膜は、ナフィオン（デュポン社製）、フレミオン（旭硝子社製）、アシプレックス（旭化成社製）などがあり、これらがいずれも変性フッ素樹脂膜であるのはこの理由による。

【0009】このようなフッ素樹脂は化学的に不活性であり、熱可塑性の汎用樹脂フィルムと完全に熱融着することはなく、またこれらの樹脂を接着する適当なバインダーもない。このため、このような材料を用いた燃料電池のガスシールを簡単に行うことは、きわめて難しいものであった。

【0010】また、このようなガスシール性を高めるため、必要数の燃料電池を積層し、全体を締結した後、積層電池の外壁部にシール材を塗布する試みも提案されているが、駆動中に出力の低下した単位電池を交換したいとき、このような外部シール型のものから、特定の単位電池を取り出す作業は困難であった。

【0011】

【課題を解決するための手段】以上の課題を解決するため本発明の高分子電解質型燃料電池スタックは、（水素イオン伝導性高分子電解質膜と、前記水素イオン伝導性高分子電解質膜の両面に配置した一対の多孔性触媒電極とからなる電解質膜電極接合体）と、（前記多孔性触媒電極の一方に燃料ガスを供給排出し、他方に酸化剤ガスを供給排出するガス流路を有する一対のセパレータ板）とを具備した単位電池を、締結治具により加圧積層した高分子電解質型燃料電池スタックにおいて、前記電解質膜電極接合体は、（前記多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した前記水素イオン伝導性高分子電解質膜部分）と、（前記多孔性触媒電極の縁部分の内部に入り込み、かつ、前記多孔性触媒電極の縁部分よりはみ出した前記水素イオン伝導性高分子電解質膜部分を覆うガスシール部分）とを具備したことを特徴とする。

【0012】このとき、ガスシール部分は、燃料ガスと酸化剤ガスとをセパレータに導入するための貫通穴と、前記貫通穴の外周に配置したガスケット部分とを具備したシート状構造を有することが有効である。

【0013】以上の構成を用い、締結治具を緩めることで、電解質膜電極接合体またはセパレータ板を個々に取り出し交換できることを可能とする。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明のポイントである電解質膜電極接合体の作成は、まず、多孔性触媒電極より少し大きめに水素イオン伝導性高分子電解質膜を裁断し、この両面に多孔性触媒電極を置き、多孔性触媒電極の端面部の細孔部分にガスシール用の封止樹脂を圧入する。同時に多孔性触媒電極よりはみ出した水素イオン伝導性高分子

電解質膜の部分に被覆するように、封止樹脂と配置する。封止樹脂は、ポリオレフィン系樹脂、ポリスチレン系樹脂、ポリ塩化ビニル系樹脂、ポリ塩化ビニリデン系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂、ポリアクリル系樹脂、ポリアクリルアミド系樹脂、ポリジエン系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリウレタン系樹脂、シリコン系樹脂、フッ素系樹脂などの熱可塑性樹脂を用い、これを加熱しつつ射出成形（インサート成形）あるいはプレス成形することで、封止樹脂の一部を電極内に圧入する。

【0015】これにより、電解質膜電極接合体を電極相互の短絡を防止しつつ、外部から隔離し、かつハンドリングが可能な状態とする。この工法を用いると、適切な型の設計と、封止樹脂および成形条件（温度、圧力）の最適化により、所望の大きさのシール部分と、所望の深さの圧入層が容易に得られ、安定した封止処理が可能となる。この方法は無溶媒工法（熱過疎化を利用した圧入）であることから、封止処理後の体積収縮はわずかであり、耐圧の高いシールが可能であるほか、予め充分重合された樹脂であることから、熱硬化性樹脂に比して化学的に安定であり、含水したイオン伝導膜（通常強酸性を示す）と長期間接触しても侵されることなく、信頼性の高いシールが可能であるという利点がある。

【0016】また別の方法として、ガスシールのための封止材料として例えば、末端をアクリロイル基で置換した液体状のポリオレフィンを用い、これを多孔性触媒電極の端面部の細孔部分に圧入した後、電子線等の活性光線を照射し、硬化させることもできる。このとき、水素イオン伝導性高分子電解質膜として、側鎖末端の一部をアクリロイル基で置換したフルオロカーボン系材料を用いると、ガスシールの封止材料と水素イオン伝導性高分子電解質膜とは重合反応により、強い化学結合を持たせることが出来る。

【0017】さらに、この時のポリオレフィンとして、ポリエチレンーポリプロピレン共重合体を用い、共重合比や重合度を調整することで、ゴム弾性をもたせ、ガスシール部自身にガスケットないしパッキンとしての役割をもたせることが出来る。このような構成にすると、電解質膜電極接合体からパッキンまでがガスシール材により一体的にシームレスにつながり、従来のオーリングなどを用いたパッキンシール工法と較べて、大幅な信頼性の向上と工程の削減を可能とする。

【0018】また、本工法のもうひとつの特徴は、射出成形又はプレス成形により、ガスシール部に複雑な立体構造を容易に作る点にある。すなわち、型設計如何により、マニホールド（ガスポート）、ガス流路、ボルト締結孔、位置決め孔、パッキンリブ等の機構部品を、工程数を上げることなくシームレスに一体成形することで、これまでセパレーターに持たせていた機能

をガスシール部に持たせ、これにより、セパレーターの工程負担を削減し、また、セパレータとの嵌合構造を作ることによって耐圧を簡単に高めることを可能にする。

【0019】そして、本発明の最大のメリットは、締結治具を緩めることで、電解質膜電極接合体またはセパレータ板を個々に取り出し交換できる構造を高分子電解質型燃料電池スタックに与えることが出来る点にある。すなわち、電解質膜電極接合体から引き出したガスシール部分を、セパレータと同一面積のシート状に作成し、このとき上述のようにシートの面内に、ガス導入穴やボルト締結孔を形成し、これをセパレータで挟み込んだ単位電池を、締結治具を用いて所望数量積層する。このようにして作成した電池スタックは、締結治具を緩めることで、所望の単位電池を取り出すことが出来る。通常、燃料電池スタックは数十個の単位電池を積層することでスタック化するが、長期運転により各単位電池の性能にはバラツキが発生する。この時の、メンテナンス対応として、個々の単位電池の電圧を測定し、特に性能が低下したものを簡単に交換することを可能とする。

*

* 【0020】

【実施例】以下、本発明に好適の実施例を図面を用いて記載する。

【0021】（実施例1）アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約30 Åの白金粒子を25重量%担持したものを電極の触媒とした。この触媒粉末をイソプロパノールに分散させた溶液に、（化1）で示したパーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールに分散したディスパージョン溶液を混合し、ペースト状にした。このペーストを原料としスクリーン印刷法を用いて、15 cm×15 cmの大きさで、厚み250 μmのカーボン不織布の一方の面に電極触媒層を形成することで多孔質触媒電極とした。形成後の反応電極中に含まれる白金量は0.5 mg/cm²、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は1.2 mg/cm²となるよう調整した。

【0022】

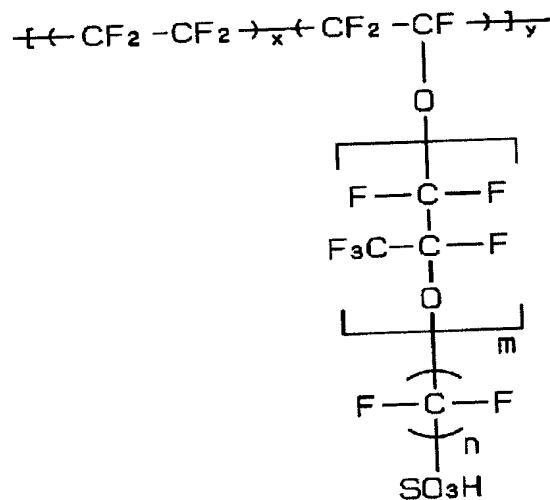
【化1】

$$x=5\sim 13.5$$

$$y\approx 1000$$

$$n=2$$

$$m=1$$



【0023】これらの電極は、正極・負極共に同一構成とし、多孔質触媒電極に対して、1 mmの外周クリアランスを持つ水素イオン伝導膜の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合して、電解質膜電極接合体を作成した。ここでは、水素イオン伝導性高分子電解質として、（化1）に示したパーフルオロカーボンスルホン酸を25 μmの厚みに薄膜化したものを用いた。

【0024】次に、本発明のポイントである電解質膜電極接合体へのガスシール部の接合方法を図3に示した。

図3に於いて、まず、電解質膜電極接合体31に対して、面方向には1 mmのクリアランスを持たせて中抜きとし、厚みは電解質膜電極接合体31より1 mm厚い、封止樹脂32をポリエチレンで作成した。つぎに、平面方向には封止樹脂32の外周に対し1 mmのクリアランスを持たせ、かつ厚み方向には電解質膜電極接合体31と等しい深さのフライス加工を施した金型33に、前記の電解質膜電極接合体と封止樹脂をいれ、125℃の温度で20 kg/cm²を2秒間ホットプレスすることで、電解質膜電極接合体と封止樹脂とを接合した。

【0025】この工程では、ホットプレスに際し、ポリエチレンは電解質膜電極接合体と金型内寸に対し、体積剰余（初期厚みの剰余に熱膨張による剰余が加わる）が生じるため、逃げ場を失ったポリエチレンが電解質膜電極接合体の多孔質触媒電極の外周部の細孔に圧入され、封止部34を形成する。封止樹脂のうち圧入されなかった部分は、電解質膜電極接合体を水平方向に外部から隔離する形となるため、これを隔離部35と呼ぶ。この封止部34と隔離部35とによりガスシール部36を形成する。このとき、封止部の幅は封止樹脂の初期厚み、接合温度、金型の設計などの最適化により任意に制御可能である。

【0026】次に、隔離部35にイソブチレン樹脂製のシートを熱融着で取り付け、図4に示したガスシールシート付き電解質膜電極接合体に仕上げた。図4に於いて、31は前述のガスシール部付き電解質膜電極接合体、41は厚みが1mmのイソブチレン樹脂製のシート部、42は燃料ガス流通用穴、43は酸化剤ガス流通用穴、44は冷却水流通用穴である。

【0027】以上の工法で作成したガスシールシートを取り付けた電解質膜電極接合体をセパレータ板で挟み込んで単電池とした。ここで用いたセパレータ板は、カーボン粉末材料を冷間プレス成形したカーボン板に、フェノール樹脂を含浸・硬化させガスシール性を改善した樹脂含浸したもので、これに切削加工でガス流路を形成した。セパレータ板の形状を図5に示した。

【0028】図5に於いて、セパレータ板の大きさは18cm×25cmの面積で、厚さは3mmのものを用い、ガス流路55は幅2mm、深さ1mmとした。ガス流路の周辺部には、ガス供給・排出用と、電池の温度を制御するための冷却水を供給・排出するためのマニホールド孔を設けた。52は燃料ガス流通用穴、53は酸化剤ガス流通用穴、54は冷却水流通用穴、51はこれらの穴とガス流路55のシール用のガスシール部でありイソブチレン樹脂で作成し、高さは1mmとした。

【0029】このように作成したガスシールシート付き電解質膜電極接合体を一對のセパレータ板と冷却水流通板で重ね合わせ、両端を面積当たり10kgf/cm²の圧力で加圧締結して本実施例の電池を電池Aとした。

【0030】電池Aに対して、以下の運転条件で電流-電圧特性を評価した。電池Aの燃料極に燃料ガス（水素80%、二酸化炭素20%、一酸化炭素50ppm）を供給し、空気極に空気を供給した。そして、電池温度を75℃、燃料ガス利用率70%、空気利用率20%とした。ガスの加湿は、燃料ガスを85℃、空気を65～70℃のパブラーをそれぞれ通して行った。評価の結果を図6に示した。

【0031】図6に於いて、データa1は、燃料ガスと空気の供給を圧力を1kg/cm²とした結果を示したものであり、以下データa2、a3は、この圧力をそれ

ぞれ3kg/cm²、5kg/cm²としたものである。また、図7にこの条件で1000時間運転した後の特性を示した。図6と図7に示した結果より、本構成の電池は、長期間の加圧運転でも、ガス漏れのないことを立証した。

【0032】（実施例2）ガスシール付き電解質膜電極接合体を作成する他の例を図8に示した。図8には封止樹脂として、一對の中抜き樹脂フィルム81を用いた例を示した。この場合、水平方向と垂直方向から圧入が発生し、封止部を形成する点、および隔離部は2枚のフィルムの熱融着により形成される点が、実施例1で示した例とは異なるが、基本的な封止構造は同じものを得ることが出来る。この時、内層（電解質膜電極接合体に当たる面）を低融点の樹脂とし、外層（金型と当たる面）を高融点の樹脂とした複層フィルムを用い、プレス後の型抜きを良くすることにより、例えば図9に示した連続生産ラインを組むことができる。

【0033】フィルムラミネートにより封止処理を行う場合、フィルムの融着温度が水素イオン伝導膜の耐熱温度を上回る場合がある。この場合の熱保護工法の一例を図10に示した。図10に於いて、インシュレーター101に対して、バネ懸架されたウオータージャケット102（この平面的な大きさがイオン伝導膜の熱保護面積、つまり電解質膜電極接合体の有効発電面積となる）と、これに対して適当なクリアランスで中抜きしたヒーターブロック103（ヒーターと金型が一体となったもの）を配置した水冷ホットプレスを用いて封止処理を行うことが出来る。この場合、融着温度が200℃をこえるポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、アクリロニトリルブタジエンスチレン等を用いた場合にも、ウオータージャケットと接する電解質膜電極接合体105は高い融着熱から保護される。

【0034】また、封止樹脂の一部を熱可塑性エラストマーに置き換えることもできる。たとえば、樹脂フィルムにポリプロピレンを用い、これに予め射出成形したポリオレフィン系エラストマー（ポリプロピレンベース）のパッキンを重ねて、パッキン溝加工を施したシール用金型に入れ、ホットプレスを行う。このとき、エラストマーのハードセグメント成分であるポリプロピレンは、フィルム材であるポリプロピレンと融着し、電解質膜電極接合体からパッキンまでが機能上シームレス（継ぎ目なし）のシールとなる。そこで、シールパッキンに合わせてセパレータに凸部を設ければ、セパレータと電解質膜電極接合体は封止構造をとることとなる。

【0035】すなわち、電解質膜電極接合体からシームレスに延長したシールエラストマー部分は、セパレータの締め付けによって弾性変形しながらセパレータ凸部と噛み合い、極めて強固なシール構造を形成することが可能となる。なお、フィルム樹脂材料とエラストマー材料は本実施例に限定されるものではなく、たとえば、

ポリエチレンテレフタレートフィルムに対してはポリエステル系エラストマーというように、それぞれの樹脂フィルムに相当するエラストマーを用いることが出来る。また、セパレータとエラストマーの嵌合構造も凸部に限定されるものではなく、セパレータにパッキン溝を設けるなど、他の方法で可能であることは言うまでもない。また、たとえば射出成形などの手法により封止部、隔離部、パッキンまで単一エラストマー樹脂で構成することももちろん可能である。

【0036】（実施例3）本実施例では、ガスシール付*10

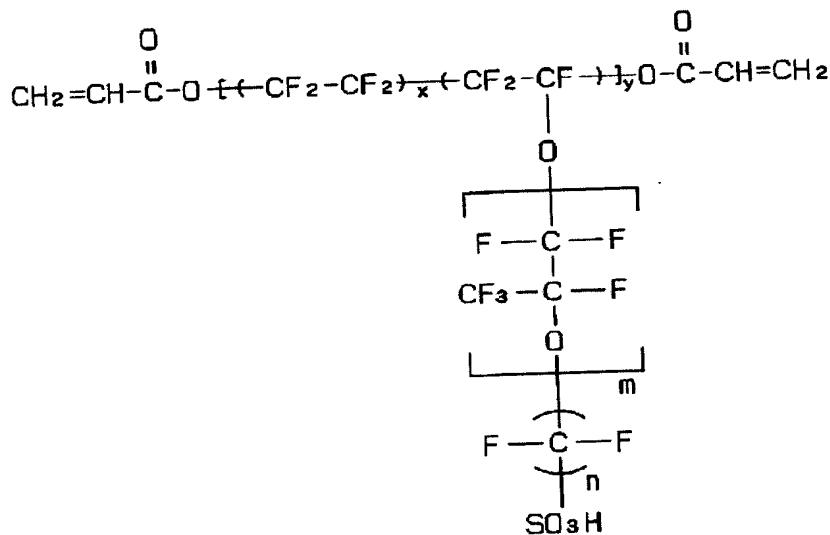
*き電解質膜電極接合体のガスシール部分と水素イオン伝導性高分子電解質膜とが接触する部分を、ガスシール剤を前記水素イオン伝導性高分子電解質膜に化学的に結合した例を示した。

【0037】電解質膜電極接合体の作成までは、実施例1と同一の材料と構成を用いた。但し、水素イオン伝導性高分子電解質膜は、（化2）に示したものをを用いた。

【0038】

【化2】

$$\begin{aligned} x &= 5 \sim 13.5 \\ y &= 1000 \\ n &= 2 \\ m &= 1 \end{aligned}$$



【0039】（化2）に示したものは、（化1）に示した水素イオン伝導性高分子電解質の末端基をアクリル化したものである。この電解質膜電極接合体を用いて、ガスシール付き電解質膜電極接合体を作成した。本実施例で使用したガスシール剤はポリエチレン-ポリプロピレン共重合体の末端基をアクリル化したのもであり、共重合比は2：3とし、重合度は約500であり、室温で粘性液状を有する。次に、図11に示した様に、外周にポリイソブチレン製のシート113を配置した内側に隙間無く電解質膜電極接合体111を入れ込み、その境界部112に前記のガスシール剤の原液を塗布し、これを電子線照射により硬化した。ここで使用したポリイソブチレン製のシートは、末端基をアクリル化したイソブチレンオリゴマーを電子線の照射量を減らして、不完全に電子線硬化したものであり、上記のガスシール剤の硬化時に、ガスシール剤の原液のアクリル基で共重合する形で一体硬化させたものである。

【0040】このようにして作成したガスシールシート付き電解質膜電極接合体に、図4で示したものと同一のガス流通穴をあけ、以下実施例1の電池Aと同一のセパ

レーター板と冷却板及び締結治具を用いて、本実施例の電池Bを作成した。

【0041】電池Bに対して、以下の運転条件で電流-電圧特性を評価した。電池Bの燃料極に燃料ガス（水素80%、二酸化炭素20%、一酸化炭素50ppm）を供給し、空気極に空気を供給した。燃料ガスと空気の供給は圧力を5kg/cm²とした。そして、電池温度を75℃、燃料ガス利用率70%、空気利用率20%とした。ガスの加湿は、燃料ガスを85℃、空気を65～70℃のパプラーをそれぞれ通して行った。評価の結果を図12に示した。図12に於いて、データb1は、運転開始後10時間が経過した時のもの、b2は1000時間、b3は2000時間が経過した時のものである。この結果より、本構成の電池は、長期間の加圧運転でも、ガス漏れのないことを立証した。

【0042】また、本電池を必要な枚数だけ締結治具により積層することで作成した電池スタックは、長期の運転により性能が劣化した素電池を、締結治具を治具を緩めるだけで交換できる。この時、当然、素電池中の電解質膜電極接合体、セパレータ板を個々に交換できること

は言うまでもない。

【0043】

【発明の効果】以上より明らかなように、本発明は燃料電池のガスシール上の問題を、簡便かつ安価に解決する有効な手段とであり、以て燃料電池の品質向上と低コスト化に資するものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】従来の燃料電池の構造を模式的に示した外見図

【図2】従来の燃料電池の構造を模式的に示した断面図

【図3】本発明の第1実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の作成方法を示した図

【図4】本発明の第1実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の構成を示した図

【図5】本発明の第1実施例である燃料電池のセパレータの構成を示した図

【図6】本発明の第1実施例である燃料電池の初期特性を示した図

【図7】本発明の第1実施例である燃料電池の長期運転後の特性を示した図

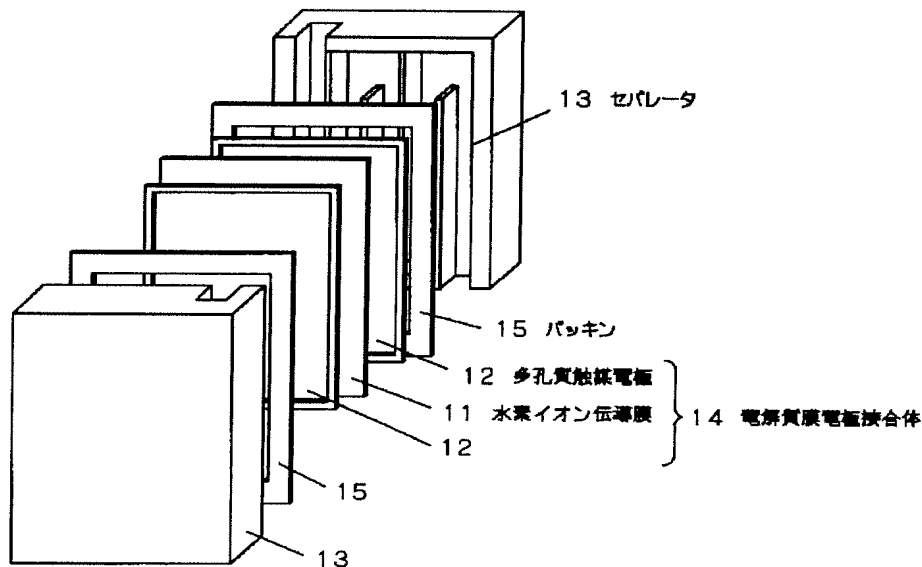
【図8】本発明の第2実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の第1の作成方法を示した図

【図9】本発明の第2実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の第2の作成方法を示した図

【図10】本発明の第2実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の第3の作成方法を示した図

*

【図1】



* 【図11】本発明の第3実施例である燃料電池のガスシール付き電解質膜電極接合体の構成を示した図

【図12】本発明の第3実施例である燃料電池の出力特性の時間変化を示した図

【符号の説明】

11 水素イオン伝導膜

12 多孔質触媒電極

13 セパレータ

14, 31, 82, 91, 105, 111 電解質膜電極接合体

15 パッキン

32, 104 封止樹脂

33, 83 金型

34, 112 封止部

35 隔離部

36, 51 ガスシール部

41, 113 イソブチレンシート

42, 52 燃料ガス流通用穴

43, 53 酸化剤ガス流通用穴

44, 54 冷却水流通用穴

55 ガス流路

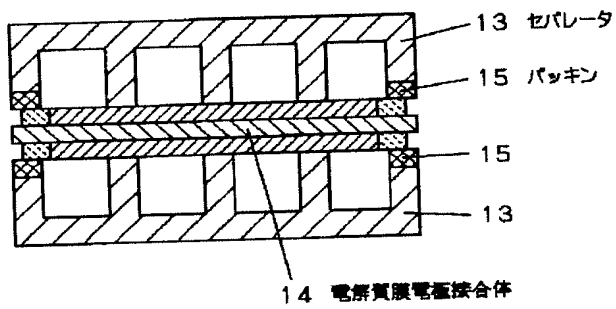
81 樹脂フィルム

101 インシュレータ

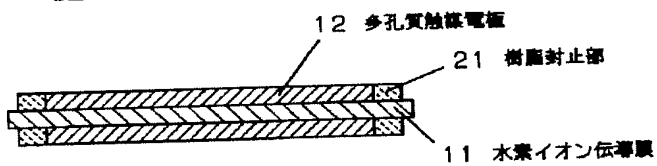
102 ウォータージャケット

103 ヒーターブロック

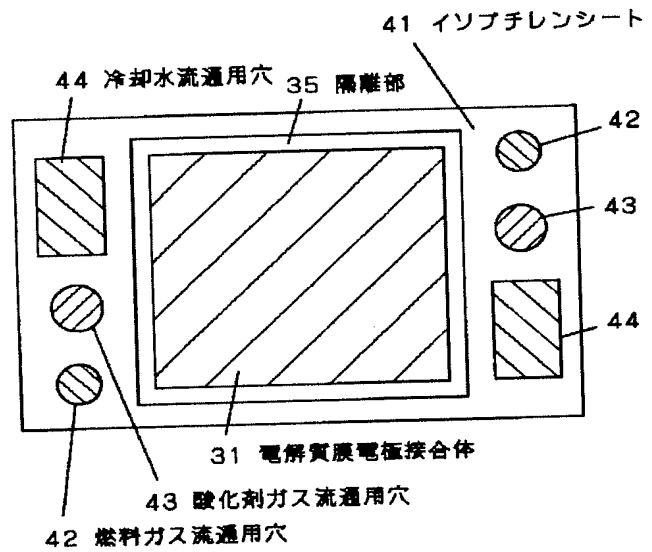
【図2】



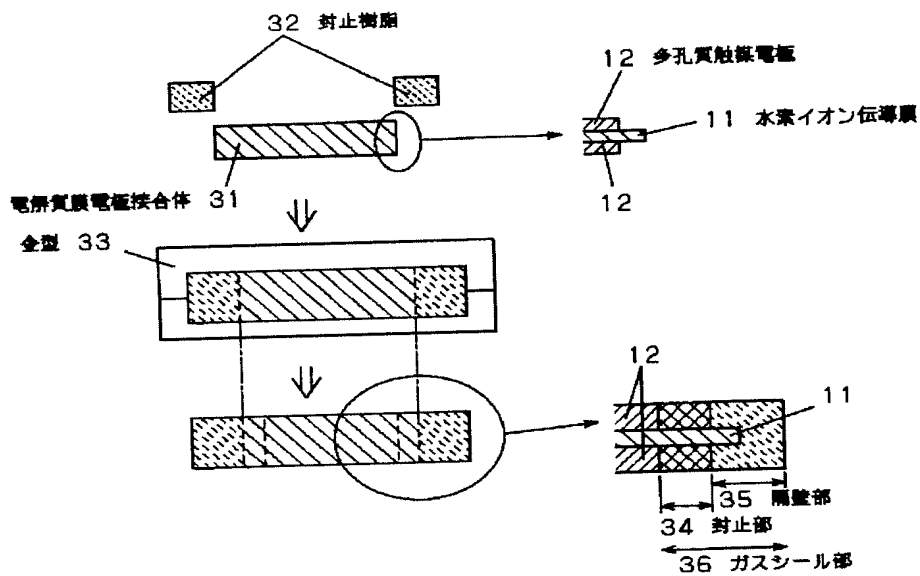
電極膜接合体詳細



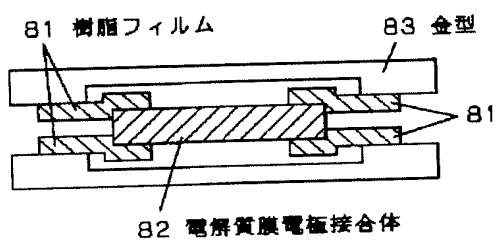
【図4】



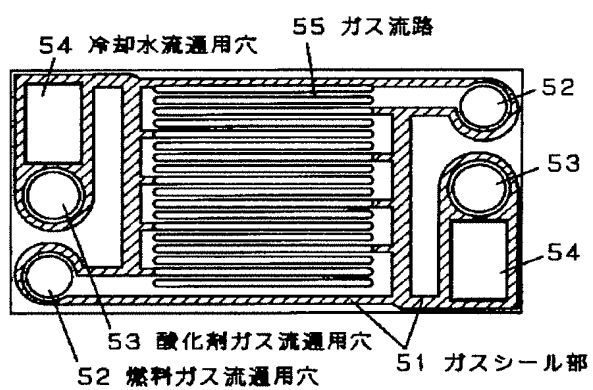
【図3】



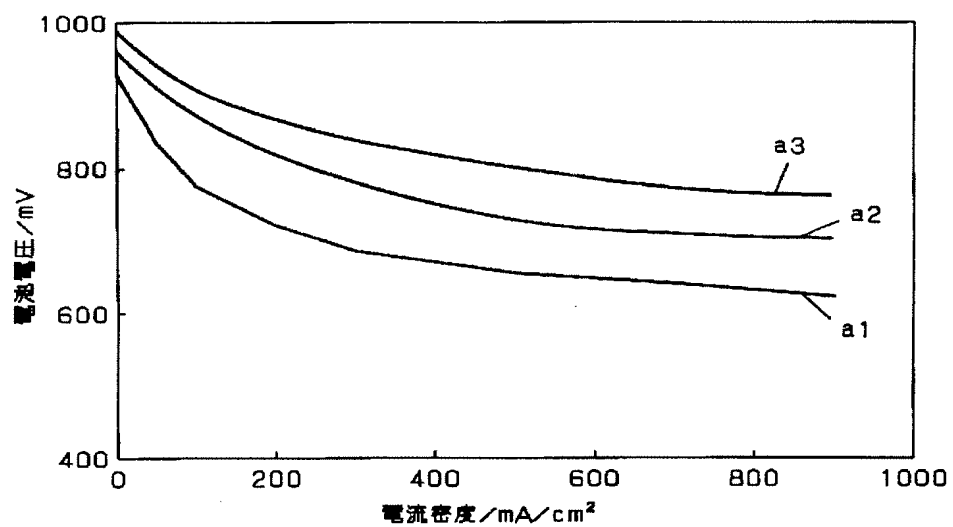
【図8】



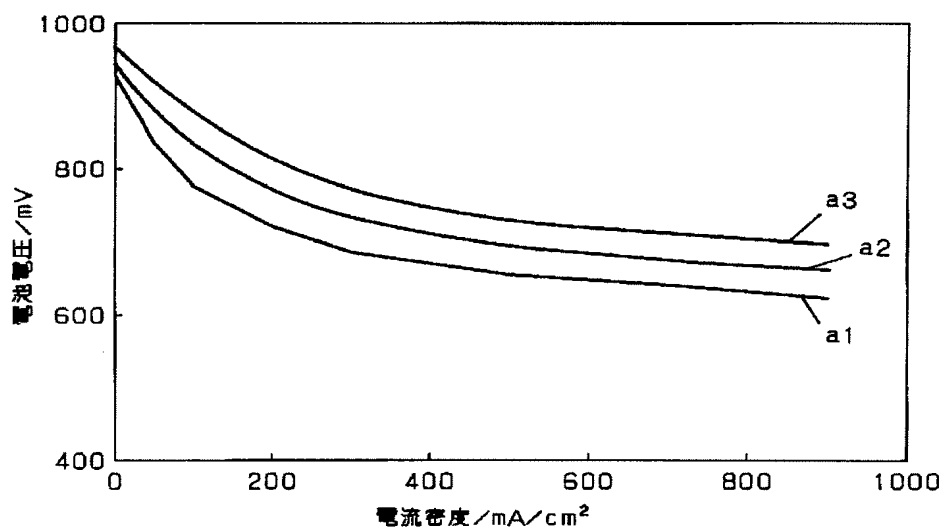
【図5】



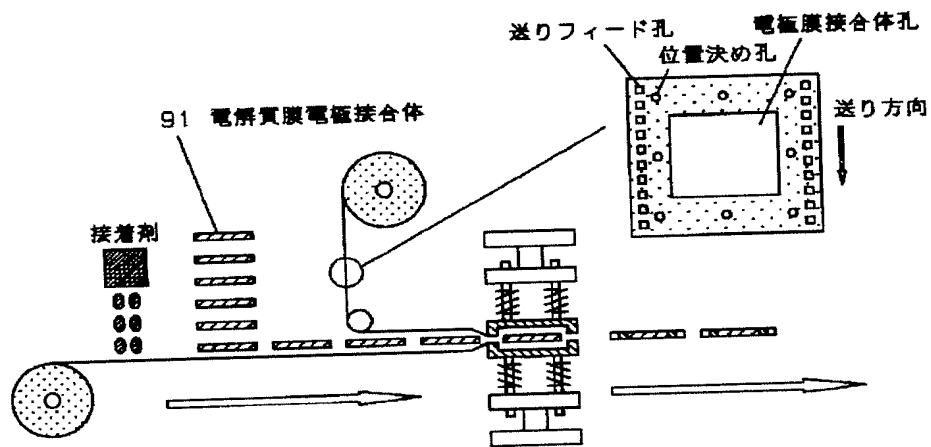
【図6】



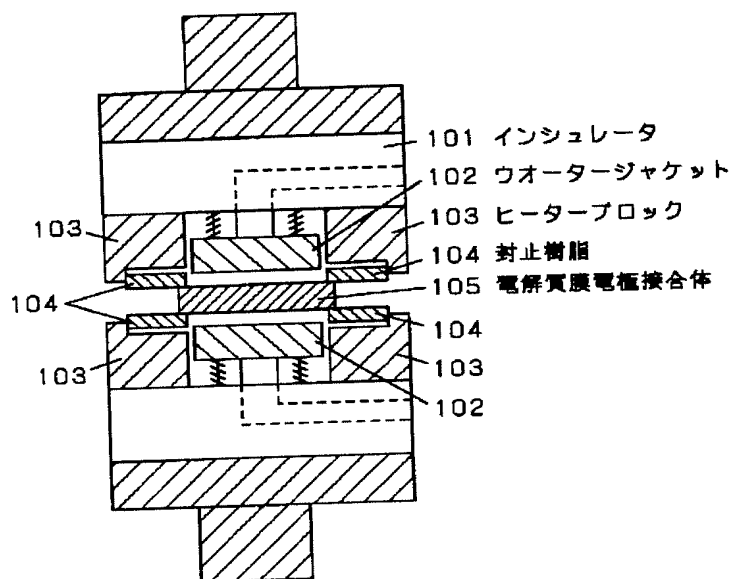
【図7】



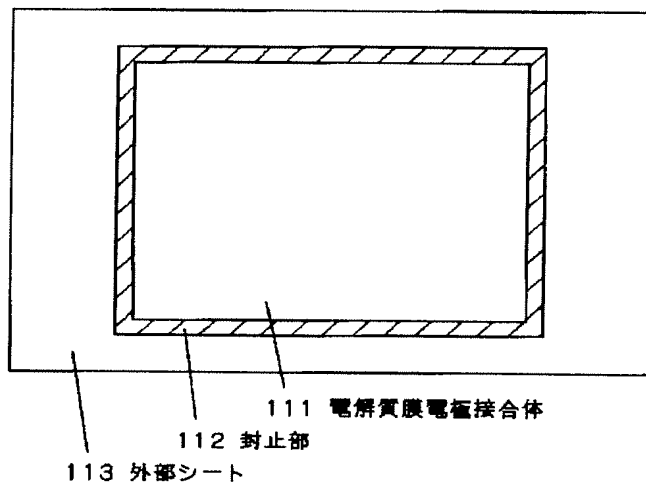
【図9】



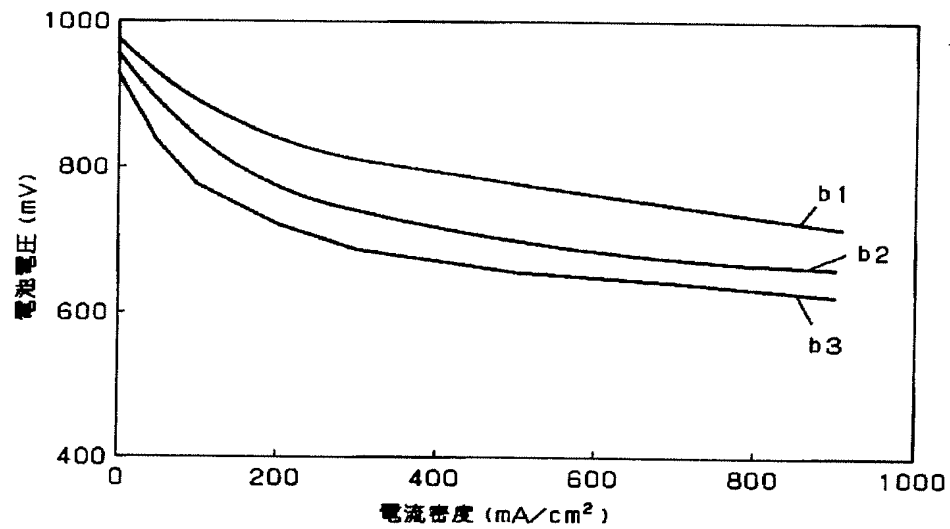
【図10】



【図11】



【図12】



フロントページの続き

(72)発明者 神原 輝壽
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB02 BB04 CC03 CC08
EE18